(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

Rec'd PCT/PTO

21 DEC 2004

(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2004 年1 月8 日 (08.01.2004)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 2004/003041 A1

(51) 国際特許分類7:

C08F 232/06, 212/08, 8/04

(FUJIOKA,Toyozo) [JP/JP]; 〒745-0843 山口県 徳山市 新宮町1番1号 Yamaguchi (JP).

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2002/006393

(22) 国際出願日:

2002年6月26日(26.06.2002)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(81) 指定国 (国内): CA, CN, ID, KR, SG, US.

リヂストン虎ノ門ビル6階 Tokyo (JP).

(26) 国際公開の言語:

日本語

(84) 指定国(広域): ヨーロッパ特許(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).

(74) 代理人: 大谷 保、外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒 105-0001 東京都港区 虎ノ門 3 丁目 2 5 番 2 号 ブ

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 出光石油 化学株式会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒130-0015 東京都 墨田区 横網一丁目 6番1号 Tokyo (JP).

添付公開書類:

一 国際調査報告書

(72) 発明者;および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 藤岡 東洋蔵 のガイダンスノート」を参照。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: HIGH-SOFTENING-POINT COPOLYMER, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME, AND PRODUCT OF HYDROGENATION THEREOF

(54) 発明の名称: 高軟化点共重合体、その製造方法及びその水素添加物

(57) Abstract: A copolymer having a softening point as high as 100 to 135°C which is obtained by thermally polymerizing cyclopentadiene and/or dicyclopentadiene with a vinylaromatic compound in the presence of a solvent in an amount of 0.1 to 0.5 times, excluding 0.5 times, by weight the amount of all monomers; and a copolymer obtained by hydrogenating the high-softening-point copolymer. The hydrogenated copolymer is suitable for use as a high-softening-point tackifier resin in hot-melt adhesives, etc.

(57) 要約:

シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換 芳香族化合物とを熱重合してなる共重合体であって、熱重合時の溶媒の 使用量が、全モノマー質量に対して 0.1倍以上、0.5倍未満であり、 かつ軟化点が 100~135℃の範囲にある高軟化点共重合体、及び該 高軟化点共重合体を水素添加して得られた共重合体水素添加物である。

本発明の共重合体水素添加物は、高軟化点を有する粘着付与樹脂として、ホットメルト接着剤などに好適に用いられる。



明細書

高軟化点共重合体、その製造方法及びその水素添加物

技術分野

本発明は、高軟化点共重合体、その製造方法及びその水素添加物に関し、さらに詳しくは、(ジ)シクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物との熱重合物からなる高軟化点共重合体、このものを効率よく製造する方法、及び前記共重合体の水素添加物からなり、粘着付与樹脂として、ホットメルト接着剤などに好適に用いられる高軟化点を有する共重合体水素添加物に関する。

背景技術

近年、ホットメルト接着剤は、高速塗工性、速硬性、バリヤ性、省エネルギー性、経済性などに優れることから、各種の分野において利用が拡大している。例えば、衛生材料用、包装用、製本用、繊維用、木工用、電気材料用、製缶用、建築用、製袋用、道路用バインダーなど、様々な分野に用いられている。

一般的なホットメルト接着剤としては、例えば天然ゴム、エチレンー 酢酸ビニル共重合体、スチレンーブタジエンースチレンブロック共重合 体及びその水素化物、スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合 体及びその水素化物などのベースポリマーに、粘着付与樹脂や可塑剤な どを配合した組成物が使用されている。上記粘着付与樹脂としては、一 般に石油樹脂やクマロン系樹脂、フェノール系樹脂、テルペン系樹脂、 ロジン系樹脂及びそれらの水素化物などが用いられている。 このようなホットメルト接着剤においては、粘着付与樹脂として、恒温クリープ及び保持力を向上させるために、軟化点が125~160℃程度の高軟化点樹脂を用いることが多い。しかしながら、このような高軟化点の粘着付与樹脂は、通常の重合方法では合成が困難であって、重合時間を非常に長くするなどの操作が必要となり、経済性の面で問題があった。

発明の開示

本発明は、このような状況下で、高軟化点を有する粘着付与樹脂として、ホットメルト接着剤などに好適に用いられる共重合体水素添加物、 及びその原料として用いられる高軟化点共重合体を、経済性よく提供することを目的とするものである。

本発明者は、前記の目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物とを熱重合する際に、溶媒をモノマーに対して特定の割合で用いることにより、短時間で高軟化点を有する共重合体が得られること、そしてこの共重合体を水素添加することにより、高軟化点を有する粘着付与樹脂として、ホットメルト接着剤などに好適に用いられる共重合体水素添加物が経済性よく得られることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、本発明は、

(1)シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物とを熱重合してなる共重合体であって、熱重合時の溶媒の使用量が、全モノマー質量に対して 0.1倍以上、 0.5倍未満であり、かつ軟化点が 100~135℃の範囲にあることを特徴とする高軟

化点共重合体、

- (2)シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物を、その100質量部当たり、10質量部以上、50質量部未満の溶媒の存在下に熱重合させることを特徴とする、軟化点が100~135℃の範囲にある高軟化点共重合体の製造方法、
- (3) 上記 (1) の高軟化点共重合体を水素添加して得られたことを特徴とする共重合体水素添加物、
- (4) 軟化点が125~160℃の範囲にある上記(3)の共重合体水 素添加物、及び
- (5) 軟化点が135~160℃の範囲にある上記(4)の共重合体水素添加物、

を提供するものである。

発明を実施するための最良の形態

本発明の高軟化点共重合体は、シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物とを熱重合してなる共重合体であって、熱重合時の溶媒の使用量が、全モノマー質量に対して0. 1 倍以上、0. 5 倍未満であり、かつ軟化点が100 \sim 135 $^{\circ}$ $^{\circ}$ 、好ましくは110 \sim 135 $^{\circ}$ $^{\circ}$ 0、範囲にある共重合体である。

前記共重合体において、原料モノマーの一成分として用いられるビニル置換芳香族化合物としては、例えばスチレン、αーメチルスチレン、ビニルトルエンなどが挙げられ、これらは一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

当該共重合体は、適当な溶媒中において、原料モノマーであるシクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンと前記ビニル置換芳香

族化合物とを熱共重合反応させることにより、製造される。ここで、溶 媒としては、例えばベンゼン、トルエン、キシレン、シクロヘキサン、 ジメチルシクロヘキサン、エチルシクロヘキサンなどの炭化水素化合物 等を好ましく用いることができる。これらは一種を単独で用いてもよく、 二種以上を混合して用いてもよい。

本発明においては、この溶媒の使用量は、モノマー100質量部に対し、10質量部以上、50質量部未満の範囲で選定することが必要である。溶媒の使用量が上記範囲を逸脱すると、短時間で所望の高軟化点を有する共重合体が得られず、本発明の目的が達せられない。好ましい溶媒の使用量は、20~45質量部である。

重合方法としては、前記溶媒を、好ましくは100℃以上、より好ましくは150℃以上に加熱し、この加熱された溶媒中に、シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物とのモノマー混合物を、分割添加しながら、共重合を行う方法が有利である。

シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換 芳香族化合物との使用割合については特に制限はないが、通常質量基準 で、70:30ないし20:80、好ましくは60:40ないし40: 60の範囲である。また、分割添加時間は、通常0.5~5時間程度、 好ましくは1~3時間である。なお、分割は等分に添加することが好ま しい。

この共重合反応においては、シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物とのモノマー混合物を分割添加し終った後も、引き続き反応させることが望ましい。その際の反応条件については特に制限はないが、反応温度は、通常200~350℃程

度、好ましくは $220\sim300$ [°]、反応圧力は、通常 $0\sim2$ MPa・G程度、好ましくは $0\sim1$. 5 MPa・G、反応時間は、通常 $1\sim1$ O時間程度、好ましくは $2\sim8$ 時間である。

反応終了後、反応生成液を、例えば温度100~300℃程度、圧力 0.1~10kPa程度で、1~3時間程度揮発分を除去処理すること により、本発明の共重合体が得られる。

このようにして得られた共重合体においては、軟化点は $100\sim13$ 5 \mathbb{C} 、好ましくは $110\sim135$ \mathbb{C} の範囲であり、また、一般に、ビニル置換芳香族化合物単位の含有量は $30\sim90$ 質量%、臭素価は $30\sim90$ 質量%、臭素価は $30\sim90$ g $\mathbb{Z}/100$ g、数平均分子量は $500\sim1$,100 程度である。 なお、上記数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC) 法で測定したポリスチレン換算の値である(以下同様)。

なお、前記軟化点は、JAI7-1991に準拠し、ボール&リング 法により測定した値である。後述の共重合体水素添加物の軟化点につい ても、同様である。

本発明においては、このようにして得られた軟化点が100~13 5℃の範囲にある共重合体を水素添加処理することにより、本発明の共 重合体水素添加物を製造する。

この水素添加反応においては、触媒としてニッケル、パラジウム、コバルト、白金、ロジウム系などの触媒が用いられる。そして、適当な溶媒、例えばシクロヘキサン、エチルシクロヘキサン、ジメチルシクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、テトラヒドロフランなどの溶媒中において、前記触媒の存在下、前述の共重合体を、温度120~300℃程度、好ましくは150~250℃、反応圧力1~6MPa・G程度、反応時間1~7時間程度、好ましくは2~5時間の条件で水素添加する。

反応終了後、反応生成液を、例えば温度100~300℃程度、圧力 0.1~10kPa程度で、1~3時間程度揮発分を除去処理すること により、本発明の共重合体水素添加物が得られる。

このようにして得られた本発明の共重合体水素添加物においては、軟化点は $125\sim160$ $\mathbb C$ 、好ましくは $135\sim160$ $\mathbb C$ の範囲であり、また、一般に、ビニル置換芳香族化合物単位の含有量は $0\sim35$ 質量%、臭素価は $0\sim30$ g / 100 g、数平均分子量は $500\sim1$, 100 程度である。

前記本発明の共重合体水素添加物は、高軟化点を有する粘着付与樹脂として、ホットメルト接着剤などに好適に用いられ、高い恒温クリープ及び保持力を有するホットメルト接着剤などを与えることができる。

本発明の共重合体水素添加物を、粘着付与樹脂として、ホットメルト接着剤に用いる場合、該ホットメルト接着剤は、一般に当該共重合体水素添加物にベースポリマー及び可塑剤などを配合することにより、調製される。

前記ベースポリマーとしては特に制限はなく、ホットメルト接着剤におけるベースポリマーとして一般に使用されているものの中から、任意のものを適宜選択して用いることができる。このベースポリマーの具体例としては、天然ゴム、エチレン一酢酸ビニル共重合体、非晶性ポリαーオレフィン、あるいはスチレンーブタジエンースチレンブロック共重合体(SBS)、スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体(SIS)及びこれらを水素添加して得られるスチレンーエチレンーブチレンースチレンゴム(SEBS)、スチレンーエチレンープロピレンースチレンゴム(SEBS)、スチレンーエチレンープロピレンースチレンゴム(SEBS)などが挙げられる。これらは、一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

一方、可塑剤としては特に制限はなく、ホットメルト接着剤における可塑剤として一般に使用されているものの中から、任意のものを適宜選択して用いることができる。この可塑剤の具体例としては、原油を常圧蒸留することにより得られる重油留分を減圧蒸留し、さらに水素化改質、脱ロウ処理などで精製することにより得られるパラフィン系プロセスオイル、あるいは減圧蒸留後、溶剤抽出や水添、白土処理によって得られるナフテン系プロセスオイル、さらにはポリブテン、液状のポリαーオレフィンなどが挙げられる。これらは、一種を単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

このホットメルト接着剤における各成分の含有割合としては、要求される物性によって異なるが、通常共重合体水素添加物30~70質量%、ベースポリマー15~40質量%、可塑剤10~40質量%の範囲である。

また、該ホットメルト接着剤には、前記の共重合体水素添加物、ベースポリマー及び可塑剤以外に、要求される物性が損なわれない範囲で、必要に応じ酸化防止剤、ワックス、フィラーなどを含有させることができる。

該ホットメルト接着剤の調製方法としては特に制限はなく、例えばプロペラ式撹拌機、二軸混練機、ニーダーなどを用いて、各成分を加熱溶融混合又は混練する方法などを用いることができる。各成分の配合順序については特に制限はなく、また、加熱温度についても特に制限はないが、通常 $120\sim190$ の範囲の温度で、加熱溶融混合又は混練が行われる。

次に、本発明を実施例により、さらに詳細に説明するが、本発明は、 これらの例によってなんら限定されるものではない。

実施例1

窒素で置換した撹拌機付きの1リットル重合反応器にキシレン15 4g(原料モノマー100質量部に対し、48質量部)を入れ、260℃ に加熱し、撹拌しながら、これにシクロペンタジエン159gとスチレ ン159gとの混合物を120分間かけて添加した。その後、引き続き 140分間共重合反応を行った。

反応終了後、反応生成液を取り出し、ロータリーエバポレーターを用いて、温度200℃、圧力1.3 k P a で2時間処理し、未反応モノマーとキシレンを除去してシクロペンタジエンとスチレンとの共重合体289gを得た。この共重合体の物性を第1表に示す。

実施例2

窒素で置換した撹拌機付きの1リットル重合反応器にキシレン120g (原料モノマー100質量部に対し、30質量部)を入れ、230℃に加熱し、撹拌しながら、これにシクロペンタジエン200gとスチレン200gとの混合物を120分間かけて添加した。その後、260℃まで60分間かけて昇温したのち、160分間共重合反応を行った。

反応終了後、反応生成液を取り出し、ロータリーエバポレーターを用いて、温度200℃、圧力1.3 k P a で2時間処理し、未反応モノマーとキシレンを除去してシクロペンタジエンとスチレンとの共重合体376gを得た。この共重合体の物性を第1表に示す。

実施例3

室素で置換した撹拌機付きの1リットル重合反応器にキシレン14 3g(原料モノマー100質量部に対し、45質量部)を入れ、240℃ に加熱し、撹拌しながら、これにシクロペンタジエン159gとスチレ ン159gとの混合物を120分間かけて添加した。その後、260℃ まで60分間かけて昇温したのち、80分間共重合反応を行った。

反応終了後、反応生成液を取り出し、ロータリーエバポレーターを用いて、温度200℃、圧力1.3 k P a で 2 時間処理し、未反応モノマーとキシレンを除去してシクロペンタジエンとスチレンとの共重合体292gを得た。この共重合体の物性を第1表に示す。

実施例4

窒素で置換した撹拌機付きの1 リットル重合反応器にキシレン8 0 g(原料モノマー1 0 0 質量部に対し、2 0 質量部)を入れ、2 4 0 $^{\circ}$ に加熱し、撹拌しながら、これにシクロペンタジエン2 0 0 g とスチレン2 0 0 g との混合物を1 2 0 分間かけて添加した。その後、2 6 0 $^{\circ}$ まで6 0 分間かけて昇温したのち、3 8 0 分間共重合反応を行った。

反応終了後、反応生成液を取り出し、ロータリーエバポレーターを用いて、温度200℃、圧力1.3 k P a で 2 時間処理し、未反応モノマーとキシレンを除去してシクロペンタジエンとスチレンとの共重合体374gを得た。この共重合体の物性を第1表に示す。

比較例1

窒素で置換した撹拌機付きの1リットル重合反応器にキシレン288g (原料モノマー100質量部に対し、90質量部)を入れ、240℃に加熱し、撹拌しながら、これにシクロペンタジエン159gとスチレン159gとの混合物を120分間かけて添加した。その後、260℃まで60分間かけて昇温したのち、500分間共重合反応を行った。

反応終了後、反応生成液を取り出し、ロータリーエバポレーターを用いて、温度200℃、圧力1.3 k P a で 2 時間処理し、未反応モノマーとキシレンを除去してシクロペンタジエンとスチレンとの共重合体295gを得た。この共重合体の物性を第1表に示す。

実施例 比較例 2 3 1 4 1 モノマー100質量部に対する 48 30 45 20 90 溶媒量 (質量部) 軟化点1) (°C) 100 112 102 130 95 スチレン単位含有量2) (質量%) 47 49 54 49 54 臭素価³⁾ (g/100g)55 55 55 56 55 $\lceil Mn \rceil^{4}$ 数平均分子量 730 940 870 980 720 $[Mw/Mn]^{4}$ 分子量分布 2. 2 2.6 2.5 2.8 2.3

第1表

[注]

- 1) JAI 7-1991に準拠し、ボール&リング法で測定
- 2) 赤外分光光度計 (波数700cm⁻¹の吸光度) により定量
- 3) VPO (蒸気圧浸透圧法) による測定
- 4) GPCによる測定

実施例5

室素で置換した撹拌機付きの300ミリリットル反応器に、シクロヘキサン70g、実施例1で得た共重合体70g及びニッケル系触媒1. 5gを入れ、水素圧力4MPa、温度230℃で4時間水素添加反応を行った。

反応終了後、反応生成液を取り出し、酸化防止剤 [チバ・スペシャリティ・ケミカルズ社製、商品名「イルガノックス1010」] 4,000ppmを添加したのち、ロータリーエバポレーターを用いて、温度200℃、1.3kPaで1時間処理し、シクロヘキサンを除去することにより、シクロペンタジエンとスチレンとの共重合体水素添加物70g

を得た。この共重合体水素添加物の物性を第2表に示す。

実施例6

実施例5において、実施例1で得た共重合体の代わりに、実施例2で 得た共重合体を用いた以外は、実施例5と同様にして、共重合体水素添加物を得た、その物性を第2表に示す。

実施例7

実施例5において、実施例1で得た共重合体の代わりに、実施例3で 得た共重合体を用いた以外は、実施例5と同様にして、共重合体水素添加物を得た、その物性を第2表に示す。

実施例8

実施例5において、実施例1で得た共重合体の代わりに、実施例4で 得た共重合体を用いた以外は、実施例5と同様にして、共重合体水素添加物を得た、その物性を第2表に示す。

比較例2

実施例5において、実施例1で得た共重合体の代わりに、比較例1で 得た共重合体を用いた以外は、実施例5と同様にして、共重合体水素添加物を得た、その物性を第2表に示す。

第2表 ———

		実施例			比較例	
		5	6	7	8	2
軟化点1)	(°C)	127	140	140	158	115
スチレン単位含有量2)	(質量%)	17	18	1	20	20
臭素価 ³⁾	(g/100g)	6	4	5	8	8
数平均分子量	[Mn] ⁴⁾	740	950	860	990	730
分子量分布	[Mw/Mn] ⁴⁾	2. 2	2. 5	2. 5	2. 8	2. 2

[注]

- 1) JAI 7-1991に準拠し、ボール&リング法で測定
- 2) 赤外分光光度計(波数700cm⁻¹の吸光度)により定量
- 3) VPO (蒸気圧浸透圧法) による測定
- 4) GPCによる測定

産業上の利用可能性

本発明の高軟化点共重合体は、(ジ)シクロペンタジエンとビニル置換芳香族化合物との熱重合物からなる共重合体であって、重合時に溶媒の使用量を制御することにより、高軟化点のものを短時間で経済性よく得ることができる。

また、前記共重合体の水素添加物である本発明の共重合体水素添加物は、高軟化点を有する粘着付与樹脂として、ホットメルト接着剤などに好適に用いられ、高い恒温クリープ及び保持力を有するホットメルト接着剤などを与えることができる。

請求の範囲

- 1. シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換 芳香族化合物とを熱重合してなる共重合体であって、熱重合時の溶媒の使用量が、全モノマー質量に対して 0. 1 倍以上、0. 5 倍未満であり、かつ軟化点が 100~135 $^{\circ}$ の範囲にあることを特徴とする高軟化点共重合体。
- 2. シクロペンタジエン及び/又はジシクロペンタジエンとビニル置換 芳香族化合物を、その100質量部当たり、10質量部以上、50質量部未満の溶媒の存在下に熱重合させることを特徴とする、軟化点が100~135℃の範囲にある高軟化点共重合体の製造方法。
- 3. 請求項1記載の高軟化点共重合体を水素添加して得られたことを特徴とする共重合体水素添加物。
- 4. 軟化点が 1 2 5 ~ 1 6 0 ℃の範囲にある請求項 3 記載の共重合体水素添加物。
- 5. 軟化点が135~160℃の範囲にある請求項4記載の共重合体水素添加物。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP02/06393

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ C08F232/06, C08F212/08, C08F8/04				
According to	o International Patent Classification (IPC) or to both na	tional classification and IPC		
	S SEARCHED			
	ocumentation searched (classification system followed b	oy classification symbols)		
Documentat	ion searched other than minimum documentation to the	extent that such documents are included	in the fields searched	
Electronic d	ata base consulted during the international search (name	e of data base and, where practicable, sear	rch terms used)	
C. DOCU	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category*	Citation of document, with indication, where ap	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
Х	EP 845484 A2 (Idemitsu Petro 03 June, 1998 (03.06.98), Claims 5, 8 & JP 11-130820 A & US & CN 1183420 A	chemical Co., Ltd.),	1,3-5	
х	<pre>JP 10-176012 A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 30 June, 1998 (30.06.98), Claims; Par. Nos. [0020], [0027]; preparation example 1 (Family: none)</pre>			
х	JP 2-51502 A (Idemitsu Petro 21 February, 1990 (21.02.90), Claims; examples; table 1 (Family: none)		1-3	
× Furth	er documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an in				
Date of the actual completion of the international search 07 August, 2002 (07.08.02) Date of mailing of the international search report 20 August, 2002 (20.08.02)				
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Authorized officer				
Facsimile No.		Telephone No.		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/JP02/06393

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 62-506 A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 06 January, 1987 (06.01.87), Claims; page 2, lower right column, line 18; examples (Family: none)	1-5
x	JP 52-140591 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 24 November, 1977 (24.11.77), Claims; table 1 (Family: none)	1-5
		·

A.	A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類 (IPC))			
<u> </u> 	Int. Cl' C08F232/06, C08F212/08, C08F8/04			
В.	調査を行	丁った分野		
		 支小限資料(国際特許分類(IPC))		
	Int.	C17 C08F2/00-246/00		
最/	小限資料以 夕	トの資料で調査を行った分野に含まれるもの		
-		ş		
国图	 祭調査で使月	用した電子データベース(データベースの名称、	調査に使用した用語)	
c.	関連する	ると認められる文献		
引力	用文献の		・ さけ この間油ナス倍所の表示	関連する 請求の範囲の番号
77	テゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると EP 845484 A2(IDEM)		1, 3-5
	X	ICAL CO., LTD.) 199	8. 06. 03, Claim	1, 0
		5, 8 & 3	JP 11-130820 A	
		&US 6040388 A1 &0	CN 1183420 A	
	x	JP 10-176012 A (出光7	5油化学株式会社)1998	1-5
	Λ	06.30、特許請求の範囲, 【00	020],【0027】,製造	
		例1 (ファミリーなし)		
1				
x	C欄の続	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。
*	引用文献(のカテゴリー	の日の後に公表された文献	
Γ.	A」特に関	連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す	「T」国際出願日又は優先日後に公表 出願と矛盾するものではなく、	された文献であって 発明の原理又は理論
L	「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日の理解のために引用するもの			
	以後に公表されたもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの			当該又献のみで発明 えられるもの
'	日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1			当該文献と他の1以
Г	文献 (理由を付す) 上の文献との、当業者にとって自明である組合せ 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 よって進歩性がないと考えられるもの			
	「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 「&」同一パテントファミリー文献			
国	際調査を完	了した日 07.08.02	国際調査報告の発送日 20.08.02	
国		の名称及びあて先	特許庁審査官(権限のある職員)	4J 2941
日本国特許庁 (ISA/JP) 小野寺 務			3 /	
	東京	都千代田区霞が関三丁目4番3号	電話番号 03-3581-1101	内線 3455

	HWANTING	
	関連すると認められる文献	関連する
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	請求の範囲の番号
X	JP 2-51502 A (出光石油化学株式会社) 1990. 0 2. 21、特許請求の範囲,実施例,表1 (ファミリーなし)	1-3
х	JP 62-506 A (出光石油化学株式会社) 1987.01. 06、特許請求の範囲,第2頁右下欄第18行目,実施例 (ファミリーなし)	1-5
X	JP 52-140591 A (日本ゼオン株式会社) 1977. 1 1. 24、特許請求の範囲,表1 (ファミリーなし)	1-5
	·	